

JP 2692452 B2 8 B32B-005/02 Previous Publ. patent JP 63296936

Abstract (Basic): JP 63296936 A

A pressure-formed or vacuum-formed nonwoven sheet comprises a skin sheet having an embossed random pattern having flat craters and crests with variable height and unwoven sheet of polyester having crystallinity of 15-45%.

Semi-stretched polyester fibre is pref. prepd. by melt-spinning polyester (e.g. polyethylene terephthalate homopolymer or copolymer) at a spinning speed of 1,600-4,000 m/min. and bonding spun fibre having shrinkage of 15-70% at dry heat temp. of 120 deg. C. The skin film has pref. shrinkage of up to 10% at dry heat temp. of 120 deg. C. thickness of 10-100 microns and basis wt. = 20-150 g/m<sup>2</sup>. It is pref. resin paper, or woven, knitted or nonwoven cloth, polyurethane film polyvinyl chloride film, polyester film or metal foil.

USE/ADVANTAGE - The sheet has light wt., soft touch and aesthetic appearance. It can be used for briefcases, suitcases, etc. interior wall of car, packing materials, etc..

O/3

Derwent Class: A32; F04; P73

International Patent Class (Main): B32B-005/02

International Patent Class (Additional): B32B-005/26; B32B-027/12

8/7/5

DIALOG(R) File 352:Derwent WPI

(c) 2003 Thomson Derwent. All rts. reserv.

004689490

WPI Acc No: 1986-192832/198630

Prodn. of new composite nonwoven cloth - comprising web and thin paper using cross linking agent

Patent Assignee: JAPAN VILENE CO LTD (NIVL )

Number of Countries: 001 Number of Patents: 001

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
JP 61124667	A	19860612	JP 84247471	A	19841122	198630 B

Priority Applications (No Type Date): JP 84247471 A 19841122

Patent Details:

Patent No	Kind	Lan	Pg	Main IPC	Filing Notes
JP 61124667	A		4		

Abstract (Basic): JP 61124667 A

Composite nonwoven cloth for working clothes in nuclear power plant etc. It is composed of web and thin paper partly fixed to the web using crosslinking agent, so that paper is bent between adjacent fixed parts.  
(4pp Dwg.No.0/0)

Derwent Class: F04; K07

International Patent Class (Additional): D04H-001/50; D06M-017/00

8/7/6

DIALOG(R) File 352:Derwent WPI

(c) 2003 Thomson Derwent. All rts. reserv.

001787462

WPI Acc No: 1977-08420Y/197706

Sheet prodn. contg. wrinkles - by bonding a film to a cloth and heating to contract the cloth

Patent Assignee: SHOWA GRAVURE KAGAK (SHOW-N); SHOWA GRAVURE KK (SHOW-N)

Number of Countries: 001 Number of Patents: 002

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
JP 51146584	A	19761215				197705 B
JP 77044917	B	19771111				197749

JP 63296936 A

1. Title of the Invention

Formable nonwoven sheet with Three-dimensional Pattern

2. Claims

- (1) A formable composite sheet with a three-dimensional pattern characterized by comprising a skin material and a nonwoven sheet containing at least 10% by weight of polyester fiber having a crystallinity index of 15% or higher and lower than 45%, the skin material and the nonwoven sheet being bonded together, and having, on the skin material side thereof, a three-dimensional pattern composed of flat parts and random protruded parts.
- (2) A formable composite sheet with a three-dimensional pattern according to claim 1, characterized by having an elongation at break of 70% or more at 120°C and a stress at 30% elongation of 50 kg/cm<sup>2</sup> or less at 120°C.
- (3) A process of producing a formable composite sheet with a three-dimensional pattern, characterized by comprising the steps of adhering a low shrinking skin material and a nonwoven sheet containing a high shrinking polyester fiber, heat embossing the resulting laminate, and thermally shrinking the laminate.
- (4) A process of producing a formable composite sheet with a three-dimensional pattern according to claim 3, characterized in that the high shrinking polyester fiber has a birefringence of 0.01 to 0.07 and a crystallinity index of 15% or higher and lower than 45%.

3. Detailed Description of the Invention

[Industrial Field of Application]

The present invention relates to a formable composite sheet which comprises a skin material and a shrunken nonwoven sheet joined together, has a three-dimensional

pattern composed of flat parts and protruded parts on the skin material side thereof, and is excellent in appearance and formability.

[Prior Art]

Artificial leather such as PVC leather is widely used in bags, cases, pouches, etc. Appearance quality is of high importance for these kinds of goods.

In order to improve surface appearance for providing wide varieties of goods, surfacing materials are given a three-dimensional texture or a pattern by embossing, pattern transfer using a release sheet, printing or like processing.

In particular, three-dimensional patterning is an important factor for adding a high grade appearance to products. Embossing has usually been adopted for this purpose, but embossing has a limit in achievable depth of pattern. For example, a deep embossed pattern cannot be obtained without increasing the thickness of a sheet to be embossed, and this makes the texture coarse and hard.

JP-B-52-44917 proposes a process of forming projections (wrinkles) by making use of a shrinkable material. When the known sheet is caused to thermally shrink, it shrinks to the limit of the base material unless shrinkage is restricted by some means. So, in industrial production, thermal shrinkage is often controlled so as to result in specific width and length as designed according to the purpose. When a pin tenter or like means is used to control shrinkage of a sheet, the center of the sheet sags while the edges are held horizontal, so that heating of the sheet becomes non-uniform. As a result, the sheet surface can form projections (wrinkles) in a curved pattern, or the projections formed can vary in size. Moreover, according to the process, although a three-dimensional pattern of projections are formed on the surface, the pattern is monotonous, and a variety of patterns cannot be realized.

On the other hand, conventional artificial leather inclusive of PVC leather is

fabricated into products, such as bags, cases, and pouches, through cutting, sewing, and laminating. For streamlining fabrication steps, techniques of integrally forming artificial leather have been desired.

However, lack of extensibility and heat set capability of conventionally known artificial leather including PVC leather makes it difficult to form into products involving large deformation of a forming material or products having a complicated shape.

Additionally, the depth of patterns given to the surface by conventional techniques is not larger than 1.0 mm in most cases. Therefore, a surface pattern provided by sheet forming disappears easily.

[Problems the Invention is to Solve]

An object of the present invention is to provide a composite sheet which has a three-dimensional pattern of high projections (deep depressions) evenly distributed on its surface and is lightweight, flexible, and easily formable; and a process of producing the composite sheet.

[Means for Solving the Problems]

The object of the invention is accomplished by a formable composite sheet with a three-dimensional pattern characterized by comprising a skin material and a nonwoven sheet containing at least 10% by weight of polyester fiber having a crystallinity index of 15% or higher and lower than 45%, the skin material and the nonwoven sheet being bonded together, and having, on the skin material side thereof, a three-dimensional pattern composed of flat parts and random protruded parts.

The formable composite sheet is produced by a process characterized by comprising the steps of adhering a low shrinking skin material and a nonwoven sheet containing a high shrinking polyester fiber, heat embossing the resulting laminate, and thermally shrinking the laminate. The three-dimensional pattern of the formable

composite sheet of the present invention is one resulting from a difference in shrinkage between the skin material and the nonwoven sheet. Therefore, the composite sheet is characterized in that the skin material forming the surface has the same thickness in the flat parts and in the protruded parts. This means that the physical strength originally possessed by the skin material is retained over the entire surface of the composite sheet.

As stated previously, the skin material is a sheet material having substantially no thermal shrinkability. For example, the sheet material has a shrinkage percentage of 10% or less, preferably 5% or less, at a dry heat temperature of 120°C. In using film as a sheet material, soft film having a thickness of 10 to 100  $\mu$  is preferred. In using a fibrous sheet, a lightweight soft sheet made up of fine fibers is preferably used for easy formation of a three-dimensional pattern. For example, a fibrous sheet having a basis weight of 20 g/m<sup>2</sup> to 150 g/m<sup>2</sup> and a fiber fineness of 0.2 denier to 5.0 denier is preferred.

The skin material which can be used includes synthetic resin films, such as polyurethane film, polyvinyl chloride film, and polyester film; metal foils; and fibrous sheets, such as woven fabric, knitted fabric, and nonwoven fabric.

The nonwoven sheet in the formable composite sheet of the invention is a sheet obtained by thermally shrinking a high shrinking nonwoven sheet containing partially oriented polyester yarn having a birefringence of 0.01 to 0.07, a crystallinity index of 15% or higher and lower than 45%, and a shrinkage percentage of 15% to 70% at a dry heat temperature of 120°C.

The nonwoven sheet comprising the partially oriented polyester yarn includes a filament nonwoven sheet and a staple fiber nonwoven sheet. The filament nonwoven sheet is obtained by melt spinning a polyester-based polymer at a spinning speed of 1600 to 4000 m/min and fabricating the spun fibers into a sheet by a known spun

bonding process. The staple fiber nonwoven sheet is obtained by cutting the above-described continuous spun fibers into staple fiber, which is fabricated into a sheet by, for example, carding. A filament nonwoven sheet is preferred where the composite sheet is to be formed.

The polymers used to prepare the partially oriented polyester yarn include polyesters, e.g., polyethylene terephthalate, and co-polyesters. Crystallizable polymers which show glass transition at room temperature or higher temperatures, are capable of forming partially oriented yarn having a substantially amorphous state, and crystallize on being heated are used.

The crystallinity index of the nonwoven sheet in the formable composite sheet should be at least 15% and lower than 45%. This requirement is for preventing thermal deterioration at a forming temperature, facilitating forming, preventing deformation after forming, and improving dimensional stability after forming as described in Japanese Patent Application No. 61-121238 filed by the same applicant of the present invention. If the crystallinity index is lower than 15%, the nonwoven sheet deteriorates, changes in color, and fuses to the mold at a forming temperature only to produce formings with poor strength. If it exceeds 45%, the composite sheet is difficult to form into deep formings or complicatedly shaped formings due to insufficient stretchability of the nonwoven sheet.

The nonwoven sheet can be made solely of the partially oriented polyester yarn. Otherwise, other fibers, such as natural fibers, regenerated fibers or other synthetic fibers, can be mixed with, or superposed on, the partially oriented polyester yarn unless the effects of the invention, i.e., thermal shrinkability and formability, are not impaired.

The proportion of the partially oriented polyester yarn in the nonwoven sheet should be at least 10% by weight, preferably at least 30% by weight. One of the

reasons for this limitation is not to impair thermal shrinkability necessary to form a three-dimensional pattern, the object of the invention. At a partially oriented polyester yarn content of 30% by weight, the thermal shrinkability reduces by 40 to 50% compared with 100 wt%. At 10 wt%, the thermal shrinkability reduces by 50 to 70%.

Another reason is not to impair formability. At a partially oriented polyester yarn content of 30% by weight, the hot elongation at break reduces by 30 to 50% as compared with 100 wt%. At 10 wt%, the hot elongation at break reduces by 40 to 60%. Additionally, with a small proportion of the partially oriented polyester yarn, crystallization occurs at a forming temperature, and the resulting formed product tends to be unsatisfactory in characteristics such as heat resistance and shape retention against outer force. The proportion of the partially oriented polyester yarn is to be selected taking these conditions into consideration in light of the final use.

Bonding or interlacing of fibers constituting the nonwoven sheet is carried out by known processing, such as embossing or needle punching. Needle punching is preferred for obtaining a nonwoven sheet with soft hand. Where embossing is adopted, it is necessary to control the heat embossing roll temperature within a range of from the glass transition temperature ( $T_g$ ) to  $(T_g+60)^\circ\text{C}$  so that the resulting nonwoven sheet may be still shrinkable.

The formable composite sheet of the present invention is composed of the skin material and the nonwoven sheet bonded to each other.

Bonding is carried out by applying a thermoplastic adhesive, such as a polyacrylic ester adhesive or a polyurethane adhesive, or a reactive adhesive containing an isocyanate crosslinking agent in a known manner, such as gravure roll coating or spraying. Although the kind, the amount, and processing of the adhesive are not particularly limited, it is important to decide these factors not to cause layer separation

during production steps (such as shrinking or forming) or during use of final products.

The great feature of the formable composite sheet of the invention resides in the pattern formed on its surface, the pattern being composed of flat parts and random protruded parts. In order to realize this feature, there must be shrunken parts and non-shrunken parts in a mixed arrangement in the formable composite sheet. Hence, the partially oriented polyester yarn sheet is partially hot pressed with a heat embossing roll to form shrinkable parts and non-shrinkable parts according to a design.

The partially oriented polyester yarn in the parts hot-pressed with bosses of the heat embossing roll undergoes crystallization and is restrained from shrinking or heat-set to become non-shrinkable parts. The other parts remain shrinkable. As a whole, the heat-embossed composite sheet has parts that will shrink in the next step of thermal shrinkage mixed with parts that will not.

It is advisable that the partial hot pressing be conducted by using a pair of hot rolls having a total embossing area of 3 to 50% and a surface temperature ranging from  $(T_g+30)^{\circ}\text{C}$  to  $(\text{melting point}-50)^{\circ}\text{C}$ .

The partially hot-pressed composite sheet is then caused to shrink by heat treatment to form random protrusions on the non-hot-pressed parts.

The heat treatment for shrinkage is performed in a temperature range that does not damage the skin material, the nonwoven sheet, and the adhesive and under conditions selected so that the composite sheet may shrink to 10% to 70% of the original area. The composite sheet is allowed to shrink without restraint on an endless screen with which a heat treatment at a temperature of from  $T_g$  to  $(\text{melting point}-50)^{\circ}\text{C}$  can be given for several seconds to several minutes, or under restraint by a pin tenter, a clip tenter, and the like

The formable composite sheet with a three-dimensional pattern produced by

the above-described process has its surface composed of flat parts (the parts having been hot pressed and heat set to lose shrinkability) and protruded parts (the parts not having been hot pressed and having been heat treated to shrink).

There is thus obtained a formable composite sheet having a three-dimensional decorative appearance, lightness, and soft hand and thereby fulfilling the object of the invention.

Besides having an excellent appearance, the formable composite sheet of the invention has no or imperceptible drawbacks of conventional sheet materials having a pattern of wrinkles formed by utilizing a shrinkable material. That is, a conventional composite sheet tends to develop distorted wrinkles because of difference between edges and the center of the composite sheet or unevenness of the pattern due to unevenness of basis weight, which seriously ruin the commercial value of final products. The present invention solves these problems by providing the composite sheet with non-shrinkable parts. This is to be mentioned as a significant feature of the composite sheet according to the invention.

Furthermore, the partial hot pressing prevents the back side of the nonwoven sheet from fuzzing up, makes the composite sheet more stable in dimension (resistant against stretch by physical force), and improves the adhesion between the skin material and the nonwoven sheet.

The foregoing is the effects produced by the composite sheet's having non-shrinking parts formed by partial hot pressing.

The present invention will now be illustrated in greater detail by way of the accompanying drawings.

Figs. 1A and 1B schematically represent a perspective and a cross-section, respectively, of a formable composite sheet with three-dimensional pattern according to

the present invention.

In the Figures numeral 1 indicates a part where a non-pressed part has shrunk on being heated to form random protrusions, and numeral 2 indicates a part that has been heat set by partial hot pressing and become non-shrinkable to provide a flat part. Numeral 3 is a skin material; 4, an adhesive; and 5, a nonwoven sheet.

The skin material 3 forms the surface of the composite sheet. Since the skin material 3 has the same thickness in the protruded parts and the flat parts, it exhibits high physical strength.

With the skin material 3 and the nonwoven sheet 5 being bonded into a unitary sheet with the adhesive 4, the three-dimensional pattern of protrusions hardly lose its shape. This is because the skin material and the nonwoven sheet are adhered to each other over substantially the entire area, with the adhesive and the fibers being present in the protrusions.

Figs. 2A and 2B each schematically show a cross-section of a formed product obtained by forming a formable composite sheet with three-dimensional pattern according to the present invention.

The formable composite sheet of the present invention is formable by any known forming techniques, such as vacuum forming, pressure forming, and pressing. By heating or preheating the composite sheet to 90°C to 220°C, the composite sheet can be formed into deep formings or complicatedly shaped formings.

Owing to its excellent formability, the composite sheet of the invention can be formed without suffering from thickness unevenness, breakage, etc. to produce formings with excellent high-grade appearance. In addition, the formings obtained by using the composite sheet of the invention are less susceptible to shrinkage or deformation by heat.

Fig. 2A shows a formed article obtained by forming a composite sheet (having a three-dimensional pattern formed on its surface by thermal shrinkage) within a forming condition that allows the three-dimensional pattern to remain. Numeral 6 shows a part where the composite sheet has not been stretched and therefore undergone no surface change. Numeral 7 indicates a part where the composite sheet has been stretched by forming and has slightly flattened the three-dimensional pattern.

Fig. 2B shows a formed article obtained by forming the composite sheet to a larger degree of deformation than in the case of Fig. 2A, in which numeral 9 indicates a part that has been deformed to such a degree that the three-dimensional pattern disappears. Numeral 8 is a part where the composite sheet has not been stretched and therefore keeps the three-dimensional pattern on its surface.

As far as the formable composite sheet of the invention is subjected to forming within the condition of Fig. 2A, a formed product is obtained by stretching the wrinkles resulting from the thermal shrinkage without stretching the skin material *per se*. The formable composite sheet of the invention is thus characterized by its formability even though the skin material has small stretchability.

Because the nonwoven sheet of the formable composite sheet of the invention comprises partially oriented polyester yarn, it has the character of getting easily stretchable on being heated or preheated and increasing crystallinity and orientation on being formed to provide formings excellent in heat resistance, shape retention, and the like.

#### [Examples]

The present invention will now be illustrated in greater detail with reference to Examples. Definitions of characteristics referred to in Examples and methods of measuring the characteristics are described below.

### 1) Appearance quality of surface

The condition (appearance quality) of the surface formed by thermal shrinkage is evaluated according to the following rating system.

Rating system:

- O: The three-dimensional pattern is uniform all over the surface.
- X: Distortion occurs between the edges and the center. Unevenness of the protrusions in size, which is ascribed to unevenness of basis weight, is noticeable.

### 2) Thickness

Measured with a dial gauge (load: 80 g/cm<sup>2</sup>) on at least three points to obtain an average.

### 3) Dry heat shrinkage percentage at 120°C

#### 3-1) Single fiber

The length of a sample fiber under a load of 0.1 g/d ( $L_0$ ) was measured. The sample was allowed to stand in a 120°C atmosphere for 5 minutes with no load applied, and the length ( $L$ ) of the sample was measured again under the same load. The shrinkage percentage is expressed by  $(L_0 - L)/L_0 \times 100$ .

#### 3-2) Sheet

A 25 cm square specimen was cut out of a sample sheet. Marks were made on positions 20 cm apart in both the machine and transverse directions. The specimen was allowed to stand in a hot air drier at 120°C for 5 minutes, and the dimensional changes were measured to obtain a shrinkage percentage. Measurement was made for five specimens per sample ( $n=5$ ) to obtain an average.

### 4) Crystallinity index

A crystallinity index was obtained from equatorial X-ray diffraction intensity.

X-ray diffraction intensities were measured using an X-ray generator (RU-200PL supplied by Rigaku Denki), a goniometer (SG-9R), a scintillation counter, and a pulse height analyzer.  $\text{CuK}\alpha$  radiation (wavelength: 1.5418Å) monochromated through a nickel filter was used.

A sample fiber was mounted on an aluminum sample holder with the fiber axis perpendicular to the diffraction plane. The sample thickness was set at about 0.5 mm. The X-ray generator was operated at 30 kV and 80 mA. Diffraction intensities were recorded between  $2\theta=35^\circ$  and  $7^\circ$  under conditions: scanning speed,  $1^\circ/\text{min}$ ; chart speed, 10 mm/min; time constant, 1 second; divergence slit,  $1/2^\circ$ ; receiving slit, 0.3 mm; and scattering slit,  $1/2^\circ$ . The full scale of the recorder was set so that the diffraction intensity curve might be within it.

Polyethylene terephthalate fiber generally shows three main reflections in an equatorial diffraction angle range of  $2\theta=17^\circ$  and  $26^\circ$ , (100) plane, (010) plane, and (110) from low to high angle. Fig. 3 is an example of the X-ray diffraction intensity curve of polyethylene terephthalate fiber, in which a indicates a crystalline region, and b an amorphous region.

A crystallinity index is obtained as follows. A straight line is drawn to connect the feet of the resulting diffraction intensity curve between  $2\theta=7^\circ$  and  $2\theta=35^\circ$ , which is taken as a base line. As depicted in Fig. 3, a straight line is drawn to connect the valley near  $2\theta=20^\circ$  with the foot in the lower angle side and the foot in the higher angle side. The curve is thus divided into a crystalline region and an amorphous region. The crystallinity index is calculated according to equation:

$$\text{Crystallinity index} = \frac{\text{scattering intensity of crystalline region}}{\text{total scattering intensity}} \times 100$$

##### 5) Birefringence ( $\Delta n$ )

Measured with a polarizing microscope equipped with a Berek compensator under white light.

6) Strength and elongation (JIS L1096)

A strength-elongation curve was prepared with a universal tensile tester (Auto Graph DSS-2000 from Shimadzu Corp.) under conditions: distance between jaws, 10 cm; pulling speed, 20 cm/min; and temperature, 25°C and 120°C.

A stress at 30% elongation (30% elongation stress) is represented by dividing the strength at 30% elongation by the cross-sectional area of a sample.

7) Tear strength (JIS L1096)

A specimen having a size of 5 cm in the machine direction and 15 cm in the transverse direction was tested on the same tensile tester as used in (6) (single tang method).

8) Peel strength

A peel strength between the skin material and the nonwoven sheet per a specimen width of 3 cm was measured with the same tester as used in (6).

9) Stiffness (JIS L1096A)

A 2 cm wide specimen was placed on a horizontal stage having a smooth surface and a 45° downward incline on its one side, with the end of the specimen even with the top of the incline. The specimen was slowly slid toward the incline. The stiffness of the specimen is represented by the sliding length of the specimen measured when the middle point of that end of the specimen reached the incline.

10) Fuzz resistance of nonwoven sheet

A 3 cm wide and 20 cm long specimen was given 100 double strokes of rubbing under a load of 300 g on an abrasion tester II (JSPS type). Appearance change of the specimen was evaluated according to the following rating system as a measure of

abrasion resistance.

Rating system:

- A: No fuzzing at all.
- B: Slight inconspicuous fuzzing.
- C: Conspicuous fuzzing.

#### 11) Formability

A composite sheet was heated to 140° and vacuum formed in a mold having the shape of a circular truncated cone with a top diameter of 10 cm, a base diameter of 8 cm, and a variable depth. Formability was evaluated by the ratio of the sheet area after draw forming ( $S_1$ ) to the area before forming ( $S_0$ ),  $S_1/S_0$ . Forming was carried out at the area ratio  $S_1/S_0$  varying between 2.0 and 3.0, and the resulting formed articles were evaluated according to the following rating system.

Rating system:

- O: Neither breakage nor thickness non-uniformity.
- $\Delta$ : No breakage but noticeable non-uniformity in thickness.
- X: Breakage and noticeable non-uniformity in thickness.

#### 12) Heat resistance of formings

The formed article was heat treated at 160°C for 5 minutes, and deformation and shrinkage after the heating were rated as follows.

Rating system:

- O: Neither deformation nor shrinkage.
- X: Deformation and shrinkage.

#### EXAMPLE 1

Polyethylene terephthalate having an intrinsic viscosity of 0.72 was melt spun at 290°C through a rectangular nozzle having 1000 orifices with a diameter of 0.25 at a

throughput of 850 g/min and a spinning speed of 2600 m/min under a controlled air pressure of the drawing sucker located 1000 mm right below the nozzle to obtain a web of partially oriented polyester filaments at a rate of 100 g/min (crystallinity index: 28%; birefringence: 0.024; fineness: 3.7 denier; 120°C dry heat shrinkage percentage: 56%).

The resulting filament web was needle punched with felting needles #40 (from Organ Needle Co., Ltd.) under conditions of a penetration depth of 12 mm and a density of 140 punches/cm<sup>2</sup> to obtain a high shrinking nonwoven sheet (120°C dry heat shrinkage percentage: 48% in MD, 43% in TD).

A resin solution consisting of a urethane resin (Crysvon 7367SL from Dainippon Ink & Chemicals, Inc.) and small amounts of a pigment and additives was applied to a release sheet to make a 25  $\mu$  thick urethane film (120°C dry heat shrinkage percentage: 2% in MD, 1% in TD), which was used as a low shrinking skin material.

A urethane adhesive (Crysvon 4160 from Dainippon Ink & Chemicals) was applied to the back side of the low shrinking skin material at a spread of 20 g/m<sup>2</sup>, and the skin material was adhered to the high shrinking nonwoven sheet to prepare a high shrinking composite sheet.

The high shrinking composite sheet was partially hot pressed by heat embossing. Heat embossing was carried out using a resin roll and a heat embossing roll having rectangular bosses of 2.2 cm<sup>2</sup> each in a total embossing area ratio of 32% at a temperature of 140°C, under a pressure of 20 kg/cm, and a processing speed of 25 m/min. The composite sheet was passed therethrough with its nonwoven sheet side in contact with the heat embossing roll.

The partially hot-pressed, high-shrinking composite sheet was held on a pin tenter adjusted to result in a 30% area shrinkage and allowed to shrink in both MD and TD in an atmosphere of 120°C for 45 seconds to obtain a formable composite sheet with

a three-dimensional pattern according to the present invention. The characteristics of the resulting formable composite sheet are shown in Table 1.

The following observations are drawn from Table 1. The formable composite sheet of the present invention has formed thereon a three-dimensional pattern composed of flat parts and random protruded parts. The thickness largely varying between the flat parts and the protruded parts, the composite sheet has an appealing three-dimensional appearance and a uniform surface pattern. The composite sheet is tough with sufficient adhesion between the skin material and the nonwoven sheet, high peel strength, satisfactory resistance to fuzzing on its back surface, and high tear strength.

The composite sheet exhibits excellent three-dimensional formability as represented by low stress at 30% elongation at 120°C and high elongation at break at 120°C. Additionally, the resulting formed article has sufficient heat resistance.

It has thus proved that the formable composite sheet with three-dimensional pattern according to the invention has a deep three-dimensional pattern uniformly formed on its surface, is soft and appealing in appearance, and shows excellent formability.

#### COMPARATIVE EXAMPLE 1

A composite sheet was prepared in the same manner as in Example 1, except that partial hot pressing was not carried out. The characteristics of the composite sheet are shown in Table 1. It is seen from Table 1 that the composite sheet has pattern defects, such as distortion due to shrinkage difference between the edges and the center and size irregularity of the protruded parts due to basis weight unevenness.

The composite sheet was also poor in such characteristics as fuzzing resistance on its back side (nonwoven sheet side). Nevertheless, the composite sheet was excellent in formability similarly to Example 1.

It is proved that the composite sheet which has not been hot pressed in parts is poor in appearance quality as aimed in the invention and in some characteristics and fails to sufficiently fulfill the requirements of the present invention.

#### COMPARATIVE EXAMPLE 2

A nonwoven sheet made of polyvinyl chloride fiber (Teviron from Teijin; 120°C dry heat shrinkage percentage: 42%; fineness: 3 denier; fiber length: 51 mm) and having a basis weight of 100 g/m<sup>2</sup> was used as a high shrinking nonwoven sheet (120°C dry heat shrinkage percentage: 33% in MD, 31% in TD).

A composite sheet was prepared in the same manner as in Example 1 with respect to the kind of the skin material and the methods of adhesion, partial hot pressing, and thermal shrinkage, except for using the above-described high shrinking nonwoven sheet. The characteristics of the resulting composite sheet are shown in Table 1.

The following observations are extracted from Table 1. Since the hot-pressed parts are not heat set during the partial hot pressing, a three-dimensional pattern is partially formed in these parts in the thermal shrinking step, resulting in a failure to form sufficient flat parts. That is, a mixed configuration of shrinkable parts and non-shrinkable parts is not obtained for assuring uniformity of a surface pattern as aimed in the invention. As to formability, the composite sheet has poor three-dimensional formability because it suffers from marked non-uniformity of thickness when heavily deformed. Moreover, the resulting formed article has poor heat resistance. In short, satisfactory results meeting the object of the invention were not obtained.

#### COMPARATIVE EXAMPLE 3

A composite sheet was prepared in the same manner as in Comparative Example 2, except that the partial hot pressing was not carried out. The characteristics of the resulting composite sheet are shown in Table 1. As is seen from Table 1,

because there has been formed no mixed configuration of shrinkable parts and non-shrinkable parts by partial hot pressing, the resulting composite sheet suffers from the same appearance defects as in Comparative Example 1. As for formability, the composite sheet develops noticeable non-uniformity in thickness when heavily deformed. Moreover, the formed article has poor heat resistance. In short, satisfactory results meeting the object of the invention were not obtained.

TABLE I

		Example 1		Comparative Example		
Structure of Composite Sheet:		1		2		
Skin Material		urethane film		urethane film		urethane film
Nonwoven Sheet		Polyester POY*** filament nonwoven sheet		polyester POY filament nonwoven sheet		PVC*** staple nonwoven sheet
Embossing		yes		no		no
Characteristics of Composite Sheet:						
Surface Appearance Quality	Shape of Pattern	Composed of flat parts and protrusions		composed of protrusions		protrusions formed all over the surface with flat parts lost
	Pattern Uniformity	O		X		
	flat parts	0.4		-		
Thickness (mm)	protruded parts	1.5		1.4		1.5
	Crystallinity Index (%) of Nonwoven Sheet	31		30		-
Fuzz Resistance of Nonwoven Sheet		A		B		C
Stiffness (cm)		5.2		4.3		4.1
Peel Strength* (g/3cm)		760/650		430/380		250/230
Tear Strength* (kg)		4.1/3.3		3.8/3.1		2.1/1.9
30% Elongation Stress* (kg/cm <sup>2</sup> )	25°C	37/18		25/14		8/7
	120°C	16/8		14/7		7/6
Elongation at Break* (at 120°C) (%)		310/330		325/340		170/180
Formability	S <sub>1</sub> /S <sub>0</sub> =2.0	O		O		Δ
	S <sub>1</sub> /S <sub>0</sub> =3.0	O		O		X
Heat Resistance of Formed Article		O		O		X

\* MD/TD; \*\* partially oriented yarn; \*\*\* polyvinyl chloride

#### [Effect of the Invention]

The formable composite sheet of the present invention has a three-dimensional pattern of high projections (deep depressions) evenly distributed on its surface. It is excellent in appearance and design, is lightweight and flexible, and has a three-dimensional formability. Therefore, it can widely be used for formable materials in the field which cannot have been handled by the conventional artificial leather or PVC leather, e.g., various trays such as bags, cases and pouches, inner decoration materials for automobile, interior materials, and packaging materials.

#### 4. Brief Explanation of Drawings

Fig.1A is schematically perspective view of a formable composite sheet with three-dimensional pattern according to the present invention, and Fig. 1B is its cross-sectional view, wherein 1 indicates a three-dimensional pattern, and numeral 2 indicates a flat part. Numeral 3 is a skin material; 4, an adhesive; and 5, a nonwoven sheet.

Fig. 2A is schematically cross-sectional view of a formed product in which a three-dimensional pattern remains on its surface by forming a composite sheet. Fig. 2B is schematically cross-sectional view of a formed product in which a composite sheet is formed to a larger degree of deformation and a three-dimensional pattern disappears.

Numerals 6 and 8 show a part which has undergone no surface change, and numerals 7 and 9 indicate a part where the composite sheet has been stretched by forming and has slightly flattened the three-dimensional pattern.

Fig. 3 is a graph showing an example of the X-ray diffraction intensity curve of polyethylene terephthalate fiber, in which **a** indicates a crystalline region, and **b** an amorphous region.

⑨ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

昭63-296936

⑬ Int. Cl.<sup>4</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公開 昭和63年(1988)12月5日

B 32 B 5/02  
5/26  
27/12

A-7199-4F  
7199-4F  
6762-4F

審査請求 未請求 発明の数 2 (全9頁)

⑮ 発明の名称 立体シボを有する成型性不織シートとその製造方法

⑯ 特 願 昭62-131291

⑰ 出 願 昭62(1987)5月29日

⑱ 発 明 者 岩 崎 博 文

大阪府高槻市八丁駱町11番7号 旭化成工業株式会社内

⑲ 発 明 者 北 村 寛

大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番6号 旭化成工業株式会社内

⑳ 出 願 人 旭化成工業株式会社

大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番6号

㉑ 代 理 人 弁理士 青 木 朗

外4名

明 細 書

1. 発明の名称

立体シボを有する成型性不織シートとその製造方法

2. 特許請求の範囲

1. 表皮材と、結晶化度指数が15%以上、45%未満のポリエステル系繊維を、少なくとも10重量%含む不織シートとを接着した複合シートであって、該複合シートの表皮材側表面に、平坦部と、無作為の立体シボ部とから成る模様が形成されていることを特徴とする立体シボを有する成型性複合シート。

2. 前記複合シートの120℃の破断伸度が70%以上、120℃の30%伸長応力が50kg/cm以下であることを特徴とする特許請求の範囲第1項記載の立体シボを有する成型性複合シート。

3. 低収縮性表皮材と、高収縮性ポリエステル系繊維を含む不織シートとを接着させた後、加熱エンボス加工を行い、次いで、加熱収縮させることを特徴とする立体シボを有する成型性複合シ

トの製造方法。

4. 前記高収縮性ポリエステル系繊維の複屈折率が0.01~0.07、結晶化度指数が15%以上、

45%未満であることを特徴とする特許請求の範囲第3項記載の立体シボを有する成型性複合シートの製造方法。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は、表皮材と、収縮した不織シートとが接着されて構成され、表皮材側表面に平坦部と立体シボ部が混在した模様が形成されて、意匠性、成型性に優れている成型性複合シートに関する。

(従来の技術)

カバン・ケース・袋物等に、合皮レザー、塩ビレザーが多く利用されている。

この分野の商品にとって、要部の外観品位は非常に重要である。

表面の外観を加飾するために、エンボス加工、模機付離型紙加工、或はプリント印刷加工等の技

術により、表面への立体感の付与、模様付けなどにより、製品の多様化がはかられている。

特に立体感の付与は、製品に高級感を与える上で重要な要素であり、現在一般的にエンボス加工法が採用されているが凹凸の程度に限界がある。

例えば、エンボス加工で深い凹凸を得ようとする、シートの厚みが大となり、風合が粗硬になるなどの問題がある。

又、収縮素材を利用して、表面に突出部（シワ）を形成させる方法が、特公昭52-44917号公報に提案されている。ところが、従来公知のシートを、熱収縮させる時、何等かで規制しない限り、基材の熱収縮率まで収縮してしまう。そこで、工業的に生産する場合には、目的に応じた、巾、長さになるように熱収縮をコントロールすることが多い。この場合、例えば、ピンテンターなどを用いて規制収縮させると、シートのたわみ状態が、巾方向の、中央部と、両端部で異なり、シートの加熱が不均一となる。その結果、表面に形成される突出部（シワ）が、湾曲した模様となったり、突出部の

大きさ斑などが発生するという欠点が生ずる。更に、前記方法では、表面に突出部がある立体感模様が形成されるが、表面模様が単一化され、多様化がはかられないという問題がある。

一方、従来公知の合皮レザー・塩ビレザーは、裁断・縫製、及び貼り合せなどによって、カバン・ケース、袋物等が製品化されている。

そこで、工程を合理化するために、一体成型によって、製品化することが求められている。

しかし、従来公知の合皮レザー・塩ビレザーは、シート成型を試みても、伸服性、熱セット性、等が不充分であり、変形量の大きい形状、或は、複雑な形状をもった製品の成型は困難である。

又、従来行われている表面への立体感の付与・模様付けは、深さが1.0mm以下と浅いのがほとんどである。従って、シート成型により、表面の模様が消え易いという問題がある。

〔発明が解決しようとする問題点〕

本発明は、表面に、深い凹凸の模様が均質に形

成され、軽量で、柔軟であり、且つ優れた成型性を有する複合シートとその複合シートの製造方法を提供することを目的とする。

〔問題点を解決するための手段〕

本発明の目的は、表皮材と、結晶化度指数が15%以上、45%未満のポリエステル系繊維を、少なくとも10重量%含む不織シートとを接合した複合シートであって、該複合シートの表皮材側表面に、平坦部と、無作為の立体シボ部とから成る模様が形成されていることを特徴とする立体シボを有する成型性複合シートによって達成される。

前記成型性複合シートの製造方法は、低収縮性表皮材と、高収縮性ポリエステル系繊維を含む不織シートとを、接合させた後、加熱エンボス加工を行い、次いで、加熱収縮させることを特徴とし、本発明の立体シボを有する成型性複合シートでは、表皮材と、不織シートとの収縮差によって、表皮材に立体シボ模様を形成される。したがって複合シートの表面を形成している表皮材は、平坦部お

よび立体シボ部の何れにおいてもその厚さが同じであるという特徴を有し、この事は表皮材の物理的強度を当初の表皮材の有する強度<sup>(1)</sup>対応するように全表面にわたって維持できることを意味する。

表皮材は、前述のように、実質的に熱収縮性のないシート状物である。例えば、乾熱温度120℃で、収縮率が10%以下、好ましくは、5%以下である。シート状物が、フィルムの場合、厚さが10μm～100μmの柔軟なフィルムが好ましく用いることができ、繊維シート状物の場合、目付が軽く、細い繊維径の柔軟シート程、立体シボ模様の形成が容易に行うことができるので好ましい。例えば、目付が20g/m<sup>2</sup>～150g/m<sup>2</sup>、綿度が0.2デニール～5.0デニールである繊維シート状物が好ましい。

前記表皮材としては、ポリウレタンフィルム、ポリ塩化ビニールフィルム、ポリエステルフィルム等の合成樹脂フィルム、金属箔類、或は、織物、編物、不織シートなどの繊維シート類が用いられる。

本発明の成型性複合シート中の不織シートは、複屈折率が0.01~0.07、結晶化度指数が15%以上、45%未満であり、且つ、乾熱温度120℃での収縮率が15%~70%の半延伸ポリエステル系繊維を含む高収縮不織シートを、加熱処理で収縮させて得られたものである。

前記半延伸ポリエステル系繊維から成る不織シートとしては、公知のスパンボンド法で、ポリエステル系ポリマーを、1600~4000m/minの紡糸速度で熔融紡糸し、シート化することによって得られる、長繊維不織シートあるいは前記、紡糸速度で熔融紡糸した後、短繊維にしてからカーディングなどによりシート化することによって得られる短繊維不織シートを用いることができる。ただし、成型加工に用いる場合、長繊維から成る不織シートが好ましい。

前記半延伸ポリエステル系繊維を製造するポリマーとしては、ポリエチレンテレフタレートなどのポリエステル系ポリマー、共重合ポリエステルポリマーなどであり、二次転移点が室温以上で実

くとも30重量%含むことである。

この理由の一つは、本発明の目的である表面に立体シボを形成させる熱収縮性を損わないためである。即ち、半延伸ポリエステル系繊維が30重量%の場合は、半延伸ポリエステル系繊維100重量%に対して、4~5割熱収縮性が減少し、半延伸ポリエステル系繊維が10重量%の場合は、5~7割熱収縮性が減少してしまうからである。

その他の理由として、本発明の目的である成型性を損わないためである。即ち、半延伸ポリエステル系繊維が30重量%の場合は、半延伸ポリエステル系繊維100重量%の熱時破断伸度に対して、3~5割減少し、半延伸ポリエステル系繊維が10重量%の場合は、4~6割減少する。又、半延伸ポリエステル系繊維の割合が少なくなると得られた成型品が成型温度で結晶化し、耐熱性、外力に対する保型性などの特性が得難くなる。したがってこれらの条件を最終的に照らして半延伸ポリエステル系繊維の割合を適切に選定すればよい。

このような場合における不織シートの構成繊維

質的に非晶状態の半延伸糸が形成でき、加熱処理により、結晶化する結晶性ポリマーが用いられる。

前記成型性複合シート中の不織シートの結晶化度指数は、本発明の出願人と同一の出願人が特願昭61-121238号で提案しているように、成型時の温度での熱劣化を防止し、成型を容易ならしめる他、成型品の変形防止、寸法安定性をはかる上で15%以上、45%未満<sup>(33)</sup>必要がある。結晶化度指数が15%未満の場合は、成型時の温度において、不織シートの劣化、変色、金型への融着が起り、成型製品の強度の劣ったものしか得られない。

45%を超えると、伸展性が小さい為、深い凹凸の成型、複雑な形状の成型が困難となる。

前記不織シートは、前記半延伸ポリエステル系繊維を100重量%、或は本発明の目的である、熱収縮性、及び成型性を損わない範囲で他の繊維、例えば天然繊維、再生繊維、他の合成繊維等を積層又は、混織することもできる。

この時、半延伸ポリエステル系繊維の割合が、少なくとも10重量%含むこと、好ましくは、少

の結合、及び交絡は、公知のエンボス加工、及び、ニードルパンチ加工などで行うことができる。前記不織シートの柔らかい風合を得る為には、ニードルパンチ加工が好ましい。又、エンボス加工の場合、加熱エンボスロール温度を、二次転移点~、二次転移点+60℃の範囲にコントロールして、収縮性を残すようにすることが必要である。

本発明の成型性複合シートは、前記表皮材と、前記不織シートが、接着されている。

接着加工は、ポリアクリル酸エステル系、ポリウレタン系などの熱可塑性接着剤、或は、イソシアネート系の架橋反応剤を使用する反応型接着剤などを、グラビヤロール法、コーティング法、スプレー法等の公知の方法によって行うことができる。但し、接着剤の種類、付着量、加工方法は、特に制限するものでないが、次いで行う、収縮加工、成型加工などの製造工程、或は、製品使用時に層間剝離を起こさないことを条件として選定することが重要である。

本発明の成型性複合シートは、表面に平坦部と、

無作為の立体シボ部とから成る模様が形成されていることを大きな特徴とする。そのために前記成型性複合シートに、収縮した部分と、非収縮部が混在させることが必要であり、本発明で用いる半延伸ポリエステル系繊維に、加熱エンボスロールで、部分熱圧着して、収縮部と、非収縮部を所定の計画にもとづき与える。

即ち、熱エンボスロール等の凸部で部分熱圧着された部分は、半延伸ポリエステル系繊維の結晶化が進み、収縮が抑制、或は、熱セットされ非収縮となり、他の部分は、収縮性を維持し、その結果、成型性複合シート全体として、後の加熱収縮工程で収縮する部分と、非収縮部分が混在したものが得られる。

前記部分熱圧着は、圧着面積率が3～50%のエンボス模様を有する一対の熱ロールを用いて、表面温度が、(二次転移点+30℃)～(融点-50℃)の範囲で行うとよい。

次に、部分熱圧着された前記複合シートは、加熱処理で収縮させ、非圧着部に、無作為の立体シ

ボ模様を形成させる。

前記加熱収縮は、表皮材、不織シート、接着剤を損傷することのない温度範囲で、収縮前の前記複合シートに対し、10%～70%面積収縮するように条件設定して行う。前記加熱収縮加工は、(二次転移点)～(融点-50%)の温度範囲で、数秒～数分間加熱処理できるエンドレススクリーン上でフリー収縮させるか、或は、ピンテンター、クリップテンターなどを用いて規制収縮させることで行われる。

前記方法によって得られた本発明の立体シボを有する成型性複合シートは、表面が、部分熱圧着で、熱セットされて非収縮の平坦部と、非圧着部が、後で加えられる加熱処理で収縮して立体シボ部から成る模様が形成されている部分とで構成される。

このようにして、本発明の目的である立体感に富み、意匠性に優れた、軽量で、柔軟な風合をもった成型性複合シートが得られる。

このようにして作られた本発明による成型性複

合シートは意匠性以外に、従来の収縮素材を利用してシワ模様が形成させた場合の欠点を解消、或は、殆んど目立たなくすることができる。即ち、前記複合シートの耳部と、中央部で、シワ模様が歪んだり、目付ムラなどの原因で、シワ模様のムラが起こり、商品価値を著しく損う現象が、本発明による複合シート中に、非収縮部を混在させることによって、解決されている。このことは、本発明の複合シートの重要な特徴として挙げることができる。

更に、前記部分熱圧着によって、裏面の不織シートの毛羽立ちが防ぐことができ、物理的力に対して伸びにくく寸法安定性が良くなり、表皮材と、不織シートの接着力が向上できる。

以上が本発明による成型性複合シートに、部分熱圧着による非収縮部を混在させることによって得られる効果である。

以下、本発明の成型性複合シートを添付図面を参照してさらに説明する。

第1A図および第1B図は、本発明の立体シボ

を有する成型性複合シートの斜視模式図および断面模式図である。

図面中1は、非圧着部分を加熱収縮させ、表面に隆起した無作為の立体シボ模様が形成されている部分を示し、2は、部分熱圧着によって、熱セットされ非収縮となり、平坦部を形成している部分を示す。図面中、3は表皮材、4は接着剤、5は不織シートである。

表皮材3は、前記複合シートの表面を形成し、その立体シボ部、及び、平坦部における厚みは、いずれの部分でも同じである為、表皮材の物理的強度が高い。

又、表皮材3と、不織シート5は、接着剤4によって、一体化されている為、隆起した立体シボ模様が、型崩れし難くなっている。それは、隆起部分まで、接着剤と繊維が介在し、実質的に全面接着されているためである。

第2A図および第2B図は、本発明の立体シボを有する成型性複合シートを、成型加工して得られた成型品の断面模式図である。

リングスリット1/2°において2θが35°から7°まで回折強度を記録する。記録計のフルスケールは、回折強度曲線がスケール内にはいるように設定する。

ポリエチレンテレフタレート繊維は、一般に赤道線の回折角2θ=17°~26°の範囲に3つの主要な反射を有する(低角度側(100)(010)(110)面)。第3図にポリエチレンテレフタレート繊維のX線回折強度曲線の一例を示す。

(図中aが結晶部、bが非晶部を表わす。)

結晶化度指数は、得られたX線回折強度曲線より、2θ=7°と2θ=35°の間にある回折強度曲線間を直線で結びベースラインとする。第3図のように2θ=20°付近の谷を頂点とし、低角側及び、高角側のすそにそって直線で結び結晶部と非晶部に分離し、次式に従って面積法で求める。

$$\text{結晶化度指数} = \frac{\text{結晶部の散乱強度}}{\text{全散乱強度}} \times 100$$

・複屈折率：白色光下で偏光顕微鏡ベレックス

コンペンセーターを用いて複屈折率(Δn)を測定する。

・強伸度：(JIS-L-1096に準ずる)

島津製作所製Auto Graph DSS-2000型万能引張試験機により把握長10cm、引張速度20cm/分で25℃、120℃の各温度で測定して求める。

30%伸長応力は、30%伸長時の強度を試料の断面積で除した値で表わす。

・引裂強力：(JIS-L-1096に準ずる)

試験片5cm×15cmをタテ、ヨコ方向それぞれ取り、前記引張試験機を用いて求める。(シングルタング法)。

・剝離強さ：強伸度と同じ試験機で、試料3cm中当りの表皮材と、不織シートの剝離強さを求める。

・剛軟度：(JIS-L-1096A法に準ずる)

試料を2cm中にとり、一端が45度の斜面をもつ表面の滑らかな水平台の斜面に合わせ、試験片を斜面の方向に緩やかに滑らせて試験片の一端の中央点が斜面に達した長さで剛軟度を表

わす。

・不織シートの毛羽強さ

タテ20cm×ヨコ3cmの試験片を摩擦試験機Ⅱ型(学振型)を用いて荷重300gで100往復摩擦させた後、試験片の外観変化を下記の判定基準に照らして判定し耐摩耗性の目安とした。

(判定基準)

A級：まったく毛羽立ちがない。

B級：少し毛羽立ちがあるが目立たない。

C級：毛羽立ちが目立つ。

・立体成型性

複合シートを140℃の温度に加熱し、上辺直径10cm、下辺直径8cm、で深さが変えられる円すい台形状の真空・プレス成型できる金型を用いて、成型加工性をみる。この時、成型する前の絞り込み面積(S<sub>0</sub>)と成型後の絞り込みされた拡大全表面積(S<sub>1</sub>)との比で成型性を見る。S<sub>1</sub>/S<sub>0</sub>が、2.0と3.0で成型加工を行ない得られた成型品を下記の判定基準で評価する。

(判定基準)

○：破れ・偏肉現象が生じなかった。

△：破れは生じないが、偏肉現象が目立った。

×：破れが生じ、偏肉現象が目立つ。

・成型品の耐熱性

成型品を、雰囲気温度160℃で5分間加熱処理し、加熱前後の変形、収縮を下記の判定基準で評価する。

(判定基準) ○：変形・収縮が生じない。

×：変形・収縮が起こる。

#### 実施例-1

孔径0.25、孔数1000ヶの矩型紡糸口金を用いて吐出量850g/minで固有粘度0.72のポリエチレンテレフタレート溶液を溶解温度290℃で紡出し、紡口直下1000mmの位置にある牽引用サッカーのエア圧力を調節して、紡糸速度2500m/minの半延伸ポリエステル長繊維ウェブ重量100g/minを取り出した。[結晶化度指数が28%、複屈折率が0.024、線度が3.7デニール、120℃の乾熱収縮

率が5.6%)

得られた長繊維ウェブを、針40番(オルガン社製)、つき深さ1.2mm、つき回数140回/cmの条件でニードルパンチ加工を行い、高収縮性不織シートを得る。(120℃乾熱収縮率がタテ4.8%、ヨコ4.3%)

表皮材は、ウレタン樹脂(大日本インキ社製、クリスボン7367SL)と少量の顔料、添加物とを混合した樹脂液を、離型紙上に塗布して、厚さ25μmのウレタンフィルムを作り、低収縮性表皮材を得る(120℃の乾熱収縮率がタテ2%、ヨコ1%)。

次いで、低収縮性表皮材の裏面にウレタン系接着剤(大日本インキ社製、クリスボン4160)を20g/m<sup>2</sup>塗布してから、前記高収縮性不織シートと重ねて、全面接着させ、高収縮性複合シートを得る。

次に、前記高収縮性複合シートに、加熱エンボスロールを用いて、部分熱圧着を施す。

部分熱圧着は、1個当り2.2cm<sup>2</sup>の四角形状が均等に分布し、圧着面積率3.2%の凸部を設けた加

熱エンボスロールと樹脂ロールを用い、温度が140℃、圧力2.0kg/cm<sup>2</sup>、加工速度25m/minで行う。この時、前記複合シート中の不織シート面と、加熱エンボスロールが接触するようにして行う。

部分熱圧着した高収縮性複合シートを、ビンテントの条件を、雰囲気温度120℃、タテ、ヨコ方向共に3.0%面積収縮させるように設定し、4.5秒間加熱処理して、収縮加工を行い、本発明の、立体シボを有する成型性複合シートを得た。

成型性複合シートの特性を第1表に示す。

第1表から云えることは、本発明の立体シボを有する成型性複合シートは、表面に、平坦部と、無作為の立体シボ部とから成る模様が形成されている。厚みが、平坦部と、立体シボ部とで差が大きく、立体感に富み、且つ、表面模様の均質なものが得られ、意匠性に優れた複合シートが得られた。更に、表皮材と、不織シートの接着が十分に剥離強さが大きく、裏面の毛羽強さも良く、引裂強度の高い、強靱なものが得られた。

又、成型性については、120℃の3.0%伸長応力が低く、120℃の破断伸度が大きく、立体成型性に優れている物であった。更に、成型品の耐熱性も良好な結果が得られた。

従って、本発明の立体シボを有する成型性複合シートは、表面に、深い凹凸の模様が均質に形成され、柔軟で意匠性が良好で、且つ、優れた成型性を有することが判った。

#### 比較例-1.

部分熱圧着を行わない以外は、実施例-1)と、同様にして、複合シートを得、第1表に特性を示す。第1表から云えることは、耳部と、中央部の巾方向での収縮発現差から生じる歪み、目付値から生じる立体シボ模様の形状の大小などの表面模様の欠点が生じる生産上の問題があった。

更に、裏面の不織シートの毛羽立ち強さなどの特性が劣る。しかし、成型性に於いては、実施例-1)と同様、優れていることが判った。

従って、部分熱圧着を施さない場合には、本発明の目的とする表面の外観品位、及び、特性に乏

しい点があり、本発明を十分満足する複合シートが得られなかった。

#### 比較例-2.

塩化ビニール繊維(帝人社製、商品名テビロン®、120℃の乾熱収縮率が4.2%、縮度3デニール、繊維長5.1mm)から成る目付100g/m<sup>2</sup>の不織シートを、高収縮性不織シートとした(120℃の乾熱収縮率がタテ方向3.3%、ヨコ方向3.1%)。

次いで、表皮材、及び、接着方法、部分熱圧着加工、加熱収縮加工については、実施例-1)と同様に行い複合シートを得、第1表にその特性を示す。

第1表から云えることは、部分熱圧着加工により、圧着部が熱セットされていない為に、加熱収縮加工に於いて、部分的に立体シボ模様が形成され、平坦部の形成が不十分となる。従って、本発明の目的とする、非収縮部と収縮部を混在させて、表面に形成される模様の均質化が得られなかった。又、成型性については、変形量を大きくすると、偏肉現象が目立ち、立体成型性に劣るものであ

た。それから、成型品の耐熱性の乏しいものであり、本発明の目的を満足する結果が得られなかった。

### 比較例-3

部分熱圧着を行わない以外は、比較例-2と同様にして、複合シートを得、第1表にその特性を示す。第1表から云えることは、部分熱圧着され、非収縮部と収縮部の混在の状態が形成されていない為に、比較例-1と同様の、外觀品位の欠点が生じ、且つ、成型性については、変形量の大きい成型加工で、偏肉現象が目立つ、更に、得られた成型品の耐熱性の乏しいものであった。

従って、本発明の目的を、満足するものが得られなかった。

第 1 表

(タテ/ヨコ)

		実施例-1	比 較 例			
			1	2	3	
複合シートの構成	表皮材	ウレタンフィルム	ウレタンフィルム	ウレタンフィルム	ウレタンフィルム	
	不織シート	半結晶性ポリエステル	半結晶性ポリエステル	熱硬化性不織シート	熱硬化性不織シート	
	エンボス加工	有	無	有	無	
複合シートの特性	断面の形状	平の収縮部と立体シボ部が形成されている。	立体シボ部の模様が見られている。	平の収縮部と立体シボ部が形成されている。	立体シボ部の模様が形成されている。	
	模様斑	○	×	×	×	
	平坦部	0.4	—	1.2	—	
	立体シボ部	1.5	1.4	1.5	1.5	
	不織シートの結晶化度指数 (%)	31	30	—	—	
	不織シートの毛羽強さ (級)	A	B	B	C	
	剛 軟 度 (cm)	5.2	4.3	4.1	3.8	
	耐 磨 強 さ (g/3cm)	760/650	430/380	250/230	210/190	
	引 張 強 度 (kg)	4.1/3.3	3.8/3.1	2.1/1.9	2.0/2.0	
	30%の伸長力 (kg/cm)	25℃	37/18	25/14	8/7	7/6
		120℃	16/8	14/7	7/6	6/5
	120℃の破断伸度 (%)	310/330	325/340	170/180	180/190	
	立体成型性	S <sub>1</sub> /S <sub>0</sub> = 2.0	○	○	△	△
		S <sub>1</sub> /S <sub>0</sub> = 3.0	○	○	×	×
	成型品の耐熱性	○	○	×	×	

本発明の成型性複合シートは、公知の成型加工方法、例えば真空成型、圧空成型あるいはプレス成型などの方法を用いて成型加工できる。その際、前記複合シートを、90℃～220℃の温度範囲に予熱又は、加熱して、深い凹凸の成型、或は、複雑な形状の成型加工ができる。

成型性が優れていることによって、上記成型加工を行っても、偏肉現象、破れなど起こらずで、高級な外観品位で、意匠性に優れている成型品が得られる。更に、本発明による複合シートを用いた成型品は、加熱によって、収縮又は変形することが少ない。

第2A図は、前記加熱収縮によって、表面に立体シボ模様を形成させた複合シートを、立体シボ模様が残る範囲で成型させて得られた成型品を示す。6は、前記複合シートが伸ばされてない部分で、表面状態の変化が生じていなく、7は、成型加工によって、前記複合シートが伸ばされ、表面の立体シボ模様がやや小さくなった部分を示す。

第2B図は、第2A図の場合より変形量を大き

くして、前記複合シートの変形部分9が、立体シボ模様の消える程度迄成型されている部分を示す。8は、前記複合シートが伸ばされず、表面に立体シボ模様がそのまま維持されている部分を示す。

本発明の成型性複合シートは、第2A図の成型加工を行う範囲に於いて、複合シート中の表皮材自身が伸ばされず、前記加熱収縮して得られた、シワを伸ばすことで成型品が得られる。従って、表皮材の伸びが小さくても、成型加工できる特徴がある。

尚、本発明の成型性複合シート中の不織シートは、半延伸ポリエステル系繊維から成る為、成型加工時の予熱又は加熱によって、容易に伸びる特性があり、且つ、得られた成型品は、成型加工によって、結晶性、配向性が増加して、耐熱性、保型性などに優れた成型品が得られる。

#### (実施例)

以下、本発明を実施例をあげて、具体的に説明する。尚、実施例に記載した特性の定義及び、測

定方法を以下に示す。

#### ・表面の外観品位

加熱収縮によって形成された表面の外観品位(模様斑)の状態を、下記の判定基準で評価する。

#### (判定基準)

○：全面にわたり、立体シボ模様の形状が均質である。

×：耳部と、中央部で歪みが生じ、目付斑の原因から生じた、立体シボ模様の大、小などの模様斑が目立つ状態である。

・厚み：ダイヤルゲージ(荷重80g/cm)を用いて3ヶ所以上測定し、その平均値で示す。

#### ・120℃の乾熱収縮率

単繊維の場合、0.1g/d荷重下での試料長をLとし、荷重を取り除き、120℃の雰囲気中に5分間処理した後、再度同じ荷重下で測定した試料長をL'とすると、収縮率はL-L'/L×100で表わされる。

シート状物の場合、試料を2.5cm角に取りタ

テ、ヨコ各々20cmの位置にマーキングして、試料を、120℃の熱風乾燥機中で5分間処理した後の寸法変化を測定し、収縮率を求める。尚、測定は、n=5の平均値で示す。

#### ・結晶化度指数

赤道方面のX線回折強度を赤道反射法により、結晶化度指数を求める。X線回折強度は、理學電機社製X線発生装置(RU-200PL)とゴニオメーター(SG-9R)、計量管には、シンチレーションカウンター、計数部には、波高分析器を用い、ニッケルフィルターで単色化したCu・Kα線(波長=1.5418Å)で測定する。

繊維試料の繊維軸がX線回折面に対して垂直となるようにアルミニウム製サンプルホルダーにセットする。この時、試料の厚みは、0.5mm/m位になるようにセットする。30kV、80mAでX線発生量を運転し、スキャニング速度1°/分、チャート速度10mm/分、タイムコンスタント1秒、ダイバージェンススリット1/2°、レシービングスリット0.3mm/m、スキャッタ

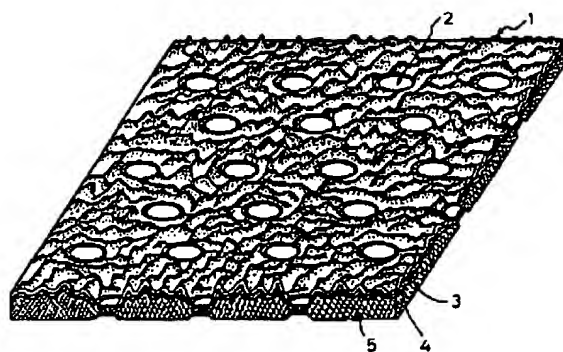
## (発明の効果)

本発明の立体シボを有する成型性複合シートは、表面に深い凹凸の均質な模様形成され、高級な外観品位で意匠性に優れ、軽量で、柔軟な風合を有し、且つ、立体形状の成型性に優れている為、従来の合皮レザー、塩ビレザーでは展開できなかった分野、例えば、カバン、ケース類、化粧箱等の各種トレイ、自動車内装材、インテリア材、包装材などの成型材料として広く利用できる。

## 4. 図面の簡単な説明

第1A図は、本発明の立体シボを有する成型性複合シートの斜視模式図であり、第1B図は、その断面模式図であり、1は、表面の立体シボ模様部、2は、表面の平坦部を示す。3は、表皮材、4は、接着剤、5は、不織シートである。

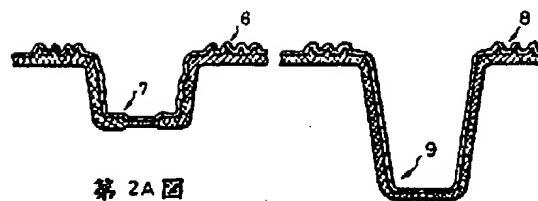
第2A図は、成型加工で絞った部分に、表面の立体シボ模様を残した成型品の断面模式図であり、第2B図は、成型加工で絞った部分に、表面の立体シボ模様が残らず、最大限に絞り成型させた時の、成型品の断面模式図である。



第1A図

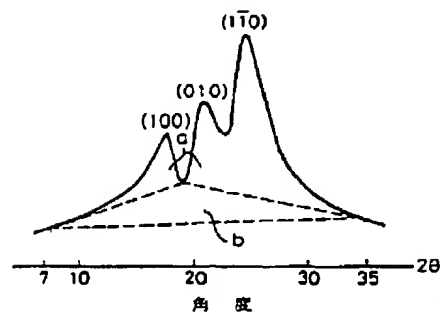


第1B図



第2A図

第2B図



第3図

図中8、8は、表面の外観品位が変わらない状態で、7、9は、成型加工によって、該複合シートが伸長し、絞り込まれた状態を示す。

第3図は、ポリエチレンテレフタレート繊維のX線回折強度の一例を示すグラフである。(図中aが結晶部、bが非晶部を表わす。)

## 特許出願人

旭化成工業株式会社

## 特許出願代理人

弁理士 青 木 朗

弁理士 西 館 和 之

弁理士 石 田 敏

弁理士 山 口 昭 之

弁理士 西 山 雅 也